УДК 621.039.74

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ БИОЛОГИЧЕСКОЙ ЗАЩИТЫ КОНТЕЙНЕРА ДЛЯ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНЕНИЯ АМПУЛЬНЫХ НЕЙТРОННЫХ ИСТОЧНИКОВ

В.А. Азаров, М.Е. Силаев

Национальный ядерный центр Республики Казахстан
E-mail: nnc@nnc.kz

Рассмотрены особенности изотопного нейтронного источника как комплексного излучателя. Определены основные требования к контейнеру для долговременного хранения нейтронных источников. На основании нормативных требований выполнен расчетно-экспериментальный анализ биологической защиты для двухцелевого контейнера. Проведена оптимизация размеров биологической защиты. Определена степень активации бетона при долговременном (до 50 лет) хранении ампульных нейтронных источников в контейнере. Внесены предложения для проектирования контейнера.

Введение

В настоящее время в Национальном ядерном центре Республики Казахстан (РГП НЯЦ РК) на стендовом комплексе "Байкал-1" введено в эксплуатацию единственное в республике специализированное хранилище для долговременного хранения ампульных источников ионизирующих излучений (АИИИ). Ежегодно в это хранилище поступают сотни АИИИ, непригодных для дальнейшей эксплуатации, в том числе значительное количество ампульных нейтронных источников (АНИ). Совместное размещение на долговременное хранение АНИ с другими АИИИ невозможно по следующим причинам:

- АНИ являются источниками нейтронного излучения, которое приводит к регенерации части АИИИ и увеличению общей активности хранящихся совместно источников;
- жесткое γ-излучение от АИИИ может индуцировать дополнительное нейтронное излучение нейтронных источников за счет (γ, n) реакции;

Кроме того, собранные в одном месте АНИ являются потенциальным источником ядерной опасности, так как содержат в своем составе делящиеся материалы (например, Pu^{239} и Cf^{252}) в значимых количествах.

В РГП НЯЦ РК проведены работы по проектированию хранилища для компактного размещения АНИ. Обязательным условием при проектировании хранилища является соблюдение правил и норм ядерной и радиационной безопасности. Поэтому экспериментально-расчетное обоснование параметров биологической защиты является одним из обязательных условий при выполнении проекта.

1. Основные требования к контейнеру и его биологической защите

Элементарной ячейкой хранилища является единичный контейнер с АНИ. Разработка контейнера для долговременного хранения АНИ является первым этапом для создания проекта хранилища. Предполагается, что контейнер может быть использован также в качестве транспортного.

Основные требования к контейнеру:

1. Контейнер должен удовлетворять требованиям радиационной и ядерной безопасности, предъявляемым при хранении и транспортировке ядерных делящихся и радиоактивных материалов.
2. Конструкция контейнера должна быть технологичной в изготовлении и обращении, то есть, по возможности, состоять из простых деталей, обладающих сравнительно небольшим весом и габаритными размерами.
3. Контейнер должен иметь как можно более низкую стоимость.
4. Конструкция контейнера должна обладать необходимым запасом прочности, устойчивостью к воздействиям внешней среды, термостойкостью и радиационной стойкостью, а также соответствующей технологичностью при проведении погрузочно-разгрузочных операций при

условиях хранения АНИ в течение длительного времени (не менее 50 лет).

5. Конструкционные материалы должны иметь пренебрежимо малую степень активации нейтронами.

Основным критерием уровня радиационной защиты, определяемым Санитарными правилами обращения с радиоактивными отходами и СПОРО-97, является значение мощности поглощенной дозы – не более 4 мР/ч на расстоянии 1 м от транспортного контейнера или контейнера-сборника. Согласно Основным санитарным правилам проектирование защиты от внешнего ионизирующего излучения в связи с возможными неточностями в исходных данных расчет вновь проектируемой защиты необходимо проводить с коэффициентом запаса по мощности эквивалентной дозы, равным 2. Поэтому в качестве порогового значения для биологической защиты контейнера была выбрана мощность эквивалентной дозы – 2 мР/ч на расстоянии 1 м от контейнера.

При проведении расчетов был выбран следующий диапазон изменения геометрических параметров биологической защиты: толщина защиты – от 1 до 100 см. Дальнейшее увеличение размеров защиты представляется нецелесообразным.

В качестве основных конструкционных материалов контейнеров рассмотрены материалы, наиболее полно отвечающие перечисленным выше требованиям к биологической защите: легкая вода; полиэтилен; парафин; бетон; железо и свинец. В качестве эффективно поглощающей нейтроны добавки была рассмотрена возможность использования бора.

2. Расчетно-экспериментальный анализ параметров биологической защиты

Анализ параметров биологической защиты выполнялся в три этапа:

- Разработка расчетных моделей.
- Расчетно-экспериментальное обоснование разработанных моделей.
- Расчетный анализ параметров проектируемой биологической защиты.

Расчет биологической защиты от излучения АНИ является многопараметрической задачей, так как излучение источника носит сложный характер и индуцирует вторичное излучение в ее материале.

Для того чтобы правильно определить параметры излучения от АНИ, проанализировать вклад различных видов излучения в общую дозу, а также оценить правильность и точность модельных расчетов, был проведен ряд экспериментальных исследований, позволяющих верифицировать результаты расчетов.

В качестве источника излучения во всех расчетных и экспериментальных работах использовались АНИ типа ИБН. Выбор данного типа источника определялся следующими причинами:

- Источники данного типа наиболее широко используются хозяйствующими субъектами Республики Казахстан.
- Источники подобного типа содержат изотоп Pu^{239}, являющегося не только радиационно-, но и ядерно-опасным материалом.
- Данный тип источников представляет наиболее серьезную опасность по окончании временного ресурса его эксплуатации, так как период полураспада Pu^{239} составляет $2{,}4 \cdot 10^4$ года, а средний гарантийный срок эксплуатации АНИ ~5 лет. Таким образом, источников такого типа (в отличие от АНИ на основе смеси Po-Be или Cf^{252}) практически сохраняет все свои радиационные и ядерные характеристики после фактического окончания срока годности.

Расчетное моделирование систем с АНИ проводилось с помощью кода MCNP-4B с использованием библиотек ENDF (Лос-Аламосская лаборатория). Данный код широко применяется во всем мире и имеет хорошую сходимость результатов с экспериментальными данными.

2.1. Расчетно-экспериментальные определение параметром гамма-излучения АНИ

Основными, значимыми для правильного определения параметров биологической защиты характеристиками поля γ-излучения от АНИ являются энергетический спектр излучения и его интенсивность (мощность экспозиционной дозы).

Для определения спектральных характеристик поля γ-излучения от АНИ был проведен гамма-спектрометрический анализ излучения источника типа ИБН-7. Измерения выполнялись с помощью спектрометрического тракта на основе Ge(Li) коаксиального полупроводникового детектора и многоканального анализатора АИ-1024. Полученные данные о спектре излучения являются представительным в диапазоне от 50 кэВ до 2,5 МэВ. Ампульный источник типа ИБН-7 располагался над детектором на расстоянии 30 см.

Анализ состава спектра в области измерений прибора показал, что поле γ-излучения вблизи источника нейтронного излучения формируется в основном захватным γ-излучением, а также излучением продуктов активации, таких элементов как марганец (Mn^{56}) и другими, входящими в состав герметичной оболочки АНИ. Для более полного анализа спектрального состава излучения необходимо проведение измерений в рентгеновской области спектра, а также в области высоких энергий, что позволит полностью идентифицировать все источники и составляющие поля излучения, а также правильно определить их вклад в формируемую мощность поглощенной (эквивалентной) дозы.

Было проведено также экспериментальное определение мощности экспозиционной дозы от Pu-Be источника в воздухе. Измерения выполнялись с помощью прибора МКС-01Р на открытой местности.

Источник располагался на высоте 20 см от поверхности земли. Расстояние между источником и детектором составляло 10 см. Среднее измеренное значение мощности эквивалентной дозы от источника составило 10,1±0,9 мкЗв/ч. Собственная погрешность прибора не превышает 20 % для измерений в области энергии γ-излучения от 40 кэВ до 10 МэВ.

Расчетный анализ поля γ-излучения АНИ выполнялся с целью уточнения разработанных моделей и определения вклада различных типов излучения в результирующую мощность поглощенной (эквивалентной) дозы γ-излучения от источника. При выполнении расчетного моделирования системы были сделаны следующие допущения:

– Состав спектра первичного γ-излучения плутония был принят в соответствии с данными, приведенными в [1] для γ-излучения с наибольшим выходом.
– Значение активности изотопов плутония в источнике принималось в соответствии с паспортными данными на АНИ (тип ИБН-7) и составляет $2{,}5\cdot10^{10}$ Бк.
– Расчет плотности потока и γ-квантов проводился для точечного детектора, расположенного на расстоянии 10 см от боковой поверхности АНИ, что соответствует экспериментальным условиям.

В результате выполненных расчетов было определено, что жесткое γ-излучение, сопутствующее (γ, n) реакции, активационное (~70 %), а также захватное (~30 %) практически полностью формируют суммарную дозу излучения от АНИ.

2.2. Расчетно-экспериментальные определение параметров нейтронного излучения АНИ

В связи с тем, что бетон, как материал биологической защиты, является наиболее привлекательным по большинству критериев, для уточнения разработанных расчетных моделей была проведена серия экспериментов, определяющих его защитные свойства по отношению к нейтронному излучению АНИ [2].

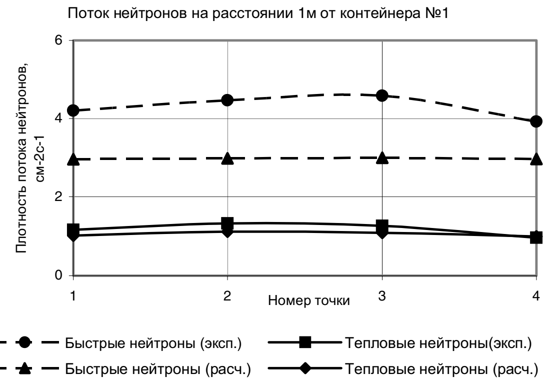


Рис. 1. *Результаты расчетно-экспериментального определения нейтронного потока вблизи бетонного контейнера*

Нейтронные источники в экспериментах размещались в бетонные контейнеры, выполненные в форме куба со стороной 500 мм. Контейнеры изготавливались из обычного неармированного бетона. Внутри контейнера располагался цилиндрический канал для АНИ диаметром 10 см и глубиной 27 см. Канал закрывался бетонной пробкой на глубину – 15 см. АНИ устанавливались на дне канала контейнера. Геометрия размещение – на оси канала.

Измерения плотности потока нейтронов проводились с помощью прибора МКС-01Р № 548 с блоком детектирования БДКН-03. Для определения количества быстрых нейтронов использовался стандартный сферический замедлитель с кадмиевой защитой (сфера из парафина диаметром 152 мм в кадмиевом экране).

Прибор предназначен для регистрации тепловых нейтронов с энергией 0,025 эВ, и надтепловых нейтронов в области энергий от 10^{-3} до 14 МэВ. Собственная погрешность прибора для плотности потока нейтронов в диапазоне от 1 до $3\cdot10^4$ нейтрон/(см$^2\cdot$с) составляет не более 20 %.

В результате выполнения экспериментов (рис. 1) выявлена их хорошая (в пределах погрешности измерений и расчетов) сходимость результатов моделирования, выполненного с помощью расчетного кода MCNP-4B.

2.3. Расчетный анализ параметров проектируемой биологической защиты

Анализ параметров проектируемой биологический защиты проводился в три этапа:

– Определение требуемой толщины защиты для выбранных материалов.
– Исследование возможности уменьшения габаритных размеров защиты.
– Расчетный анализ активации материала контейнера хранения.

2.3.1. Определение требуемой толщины защиты для выбранных материалов

При моделировании биологической защиты были сделаны следующие основные предположения и допущения:

– Во всех моделях использовался источник ИБН-12, содержащий наибольшее количество изотопа Pu^{239} и являющийся наиболее интенсивным источником ионизирующего излучения в своем классе.
– Размеры АНИ принимались в соответствии с типовыми размерами [3].
– Геометрия защиты – цилиндрическая. Толщина защитного слоя одинакова для торцевых и бокового направлений.
– Спектральный состав нейтронного излучения Pu-Be источника моделировался с помощью 62-группового приближения. Аппроксимация в каждой группе нейтронов выполнялась с помощью линейной функции.
– Расчет ослабления нейтронного излучения проводился для 5 групп нейтронов в диапазоне энергий от 0 до 10 МэВ.

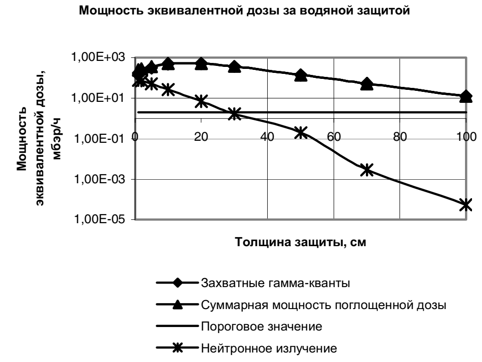


Рис. 2. *Результаты расчетов водяной защиты*

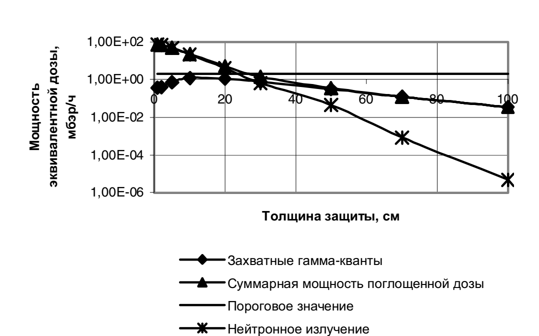


Рис. 3. *Результаты расчетов защиты из полиэтилена*

Мощность эквивалентной дозы за защитой из бетона

Мощность эквивалентной дозы, мбэр/ч

1,00E+05
1,00E+03
1,00E+01
1,00E-01
1,00E-03

0 20 40 60 80 100

Толщина защиты, см

Захватные гамма-кванты
Суммарная мощность поглощенной дозы
Пороговое значение
Нейтронное излучение

Рис. 4. *Результаты расчетов защиты из бетона*

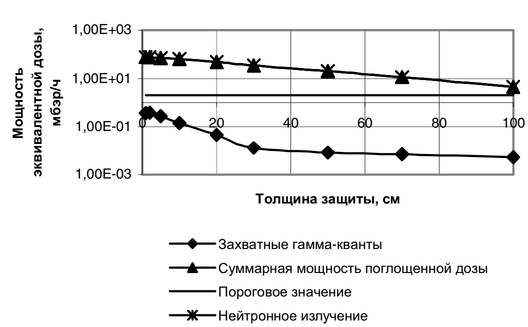
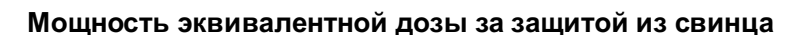


Рис. 5. *Результаты расчетов защиты из железа*

Пересчет плотности потока излучения в эквивалентную мощность дозы выполнялся с помощью данных, приведенных в [4], путем линейной интерполяции по энергетическим группам нейтронов и γ-квантов.



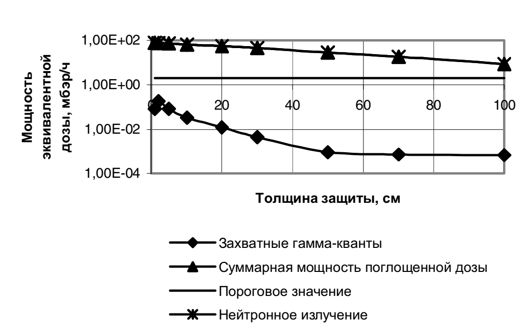


Рис. 6. *Результаты расчетов защиты из свинца*

Результаты расчетного анализа защитных свойств выбранных материалов представлены на рис. 2–6.

На основании расчетов были сделаны следующие выводы:

– Наиболее универсальными и подходящими для создания биологической защиты от комплекса излучений ампульного нейтронного источника из выбранных материалов являются полиэтилена и бетон.
– Толщина защиты из полиэтилена должна составлять ~30 см, из бетона ~60 см.
– В выбранном диапазоне толщин защиты из железа и свинца являются эффективными только в отношении γ-излучения и не обеспечивают необходимый уровень снижения нейтронного потока. Водяная защита не обеспечивает необходимого уровня снижения мощности поглощенной дозы из-за высокого уровня захватного ?-излучения, определяющего суммарную мощность дозы от излучения.

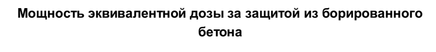
2.3.2. Исследование возможности уменьшения габаритных размеров защиты

Одним из основных требований при хранении является дешевизна контейнера, а также его прочностные характеристики. Поэтому в качестве наиболее подходящего материала для создания биологической защиты контейнера хранения был выбран бетон.

Транспортный контейнер может отличаться более высокой стоимостью, так как изготовляется в единичном экземпляре или небольшой партией. Однако повышенные требования предъявляются к его габаритным размерам, весу и другим характеристикам, имеющим большое значение при выполнении погрузочно-разгрузочных операций. Поэтому в качестве наиболее подходящего защитного материала для такого контейнера был выбран полиэтилен (парафин). Стандартные контейнеры для транспортировки источников быстрых нейтронов, используемые ВО "Изотоп", изготавливаются из парафина в корпусе из нержавеющей стали Х18Н10Т или стали 3. Контейнеры, предназначенные для перевозки нейтронных источников интенсивностью до $5\cdot10^7$ нейтрон/с (тип ИБН-12), имеют размеры: диаметр 650 мм; высота – 800 мм.

Расчет, проведенный для такого контейнера с помощью программы MCNP-4B, показал, что мощность поглощенной дозы на расстоянии 1 м от него при загрузке в контейнер источника ИБН-12 составляет 0,71 мРад/ч по захватному γ-излучению, 0,435 мРад/ч – по нейтронному излучению и 1,15 мРад/ч по суммарному излучению всех видов. Полученное значение ниже установленного порогового уровня – 2 мРад/ч.

Уменьшение габаритных размеров контейнеров может быть выполнено при условии, что для одного или обоих видов излучения (нейтронного и гамма) в состав биологической защиты добавляется гораздо более эффективный защитный материал, чем те, которые в нем присутствуют. При этом стоимость контейнера не должна значительно увеличиться, а конструкция значительно усложниться. Очевидно, что основным критерием при выборе такого защитного материала необходимо сделать возможность защиты от нейтронного излучения, так как именно оно является источником для вторичного γ-излучения. В качестве эффективного поглотителя нейтронов в материал защиты, как правило, добавляется один из самых известных и широко применяемых поглотителей нейтронов – бор. Хотя добавка только 1 % бора увеличивает, по имеющимся данным [5], стоимость бетонной защиты вдвое, однако ожидаемое снижение габаритных размеров может компенсировать увеличение затрат. Таким образом, при проведении оптимизации параметров биологической защиты был рассмотрен вариант добавки в состав защитного материала 1 % бора.



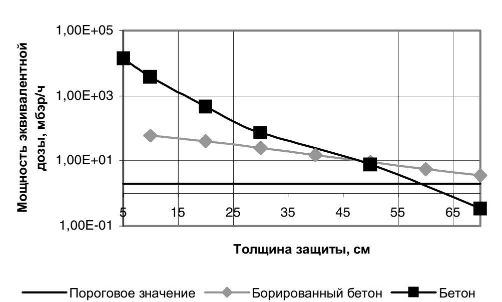


Рис. 7. Определение эффективности борной добавки в защиту из бетона

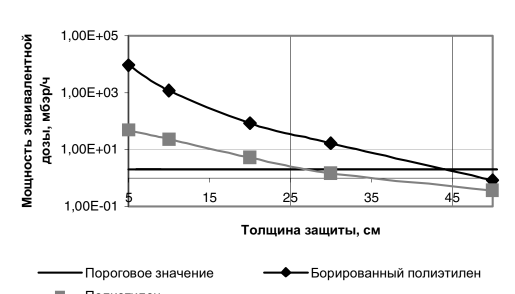


Рис. 8. Определение эффективности борной добавки в защиту из полиэтилена

Результаты расчетов для биологической защиты из бетона и полиэтилена с добавкой 1 % бора приведены на рис. 7, 8.

Анализ результатов расчетов показал, что добавка 1 % бора эффективна только для небольших толщин бетонной защиты, до 45 см. При использовании в качестве защитного материала полиэтилена, добавка 1 % бора в диапазоне толщин от 5 до 50 см является не эффективной, т.к. равносильна введению дополнительного количества более тяжелого элемента, по сравнению с углеродом и водородом, составляющим структурную формулу полиэтилена $(CH_2)n$.

2.3.3. Расчет активации материала контейнера хранения

Для определения степени активации материала контейнера хранения был определен состав микродобавок, которые активируются нейтронным излучением. Предполагалось, что поле результирующего γ-излучения формируется, в основном, долгоживущими продуктами активации с периодом полураспада более одного года. Предполагаемый состав и содержание микродобавок определялись по данным о составе земной коры, а также гранитных и сланцевых пород, приведенных в [6].

Таблица. *Состав наиболее значимых микродобавок, а также расчетная степень их активации*

Элемент	Изотоп	Реакция	Содержание в естественной смеси изотопов, отн. ед.	Образующийся изотоп	Содержание в бетоне элемента, отн. ед.	Удельная активность, Бк/г
Na	Na^{23}	n, 2n	1	Na^{22}	0,028	$3{,}66\cdot10^{-6}$
Ca	Ca^{40}	n, γ	0,9697	Ca^{41}	0,052	$1{,}54\cdot10^{-5}$
Co	Co^{59}	n, γ	1	Co^{60}	0,00002	$8{,}41\cdot10^{-3}$
Ni	Ni^{58}	n, γ	0,6788	Ni^{59}	0,000095	$2{,}14\cdot10^{-7}$
	Ni^{60}	n, p	0,2623	Co^{60}	0,000095	$1{,}12\cdot10^{-6}$
	Ni^{60}	n, 2n	0,2623	Ni^{59}	0,000095	$3{,}28\cdot10^{-13}$
	Ni^{62}	n, γ	0,0366	Ni^{63}	0,000095	$2{,}74\cdot10^{-5}$
Cs	Cs^{133}	n, γ	1	Cs^{134}	0,000004	$2{,}67\cdot10^{-3}$
Sm	Sm^{150}	n, γ	0,0744	Sm^{151}	0,000007	$1{,}44\cdot10^{-5}$
Eu	Eu^{153}	n, γ	0,5218	Eu^{154}	0,0000012	$3{,}23\cdot10^{-4}$
N	N^{14}	n, p	0,996337	C^{14}	0,00002	$1{,}46\cdot10^{-6}$
Fe	Fe^{56}	n, 2n	0,9168	Fe^{55}	0,04639	$2{,}24\cdot10^{-5}$

При выполнении расчетов были сделаны следующие предположения и допущения:

– Плотность нейтронного потока усреднялась по всему объему контейнера, а удельная активация бетона рассчитывалась для кубического контейнера со стороной 50 см (прототипа контейнера хранения, использованного в модельных экспериментах). При таком подходе полученное значение средней удельной активации материала контейнера хранения будет выше, чем у проектируемого (со стороной куба 120 см).
– Длительность активации материала биологической защиты принималась равной 50 годам,

при этом радиационный распад продуктов активации и выгорание исходных изотопов не учитывались.

Сделанные предположения и допущения позволяют рассматривать результаты расчетов, см. таблицу, как максимально возможную оценку уровня активации материала биологической защиты.

Из полученных результатов следует, что уровень активации материалов биологической защиты за 50 лет будет пренебрежимо малым даже по сравнению с уровнем естественной радиоактивности бетона. Основными радионуклидами, образующимися в ходе активации, являются изотопы Co^{60}, Cs^{134}, Eu^{154} и Fe^{55}.

3. Выводы и рекомендации

По результатам работы сделаны следующие выводы и рекомендации:

– Оптимальными материалами для защиты от излучения Pu-Be источника являются обычный бетон и полиэтилен (парафин). Бетон должен использоваться для изготовления биологической защиты для контейнера хранения, а полиэтилен – для транспортного контейнера.
– Оптимальная толщина биологической защиты из бетона составляет ~60 см; из полиэтилена ~30 см.
– Использование бора в качестве добавки к материалу защиты является дорогостоящим и малоэффективным.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. Справочник. – М.: Атомиздат, 1977. – 394 с.
2. Тихомиров Л.Н., Азаров В.А., Силаев М.Е. Экспериментальное и расчетное определение характеристик нейтронного поля вблизи бетонного контейнера, содержащего ампульные нейтронные источники // Вестник НЯЦ РК. Атомная энергетика и безопасность АЭС. – 2003. – № 1. – С. 8–12.
3. Источники альфа-, бета-, гамма- и нейтронного излучения. Каталог. – М.: Изд-во В/О "Изотоп", 1980. – С. 69–70.
4. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). СП 2.6.1.758-99. Издание официальное. – Алматы, 2000. – 80 с.
5. Копельман Б. Материалы для ядерных реакторов. – М.: Гос. изд-во литературы в области атомной науки и техники, 1962. – 568 с.
6. Риверс В.Д., Брукс Р.Р. Анализ геологических материалов на следы элементов. – М.: Недра, 1983. – 405 с.

УДК 621.384